

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-214680

(43)Date of publication of application : 15.08.1995

(51)Int.Cl.

B29C 70/06
 C08J 5/04
 // B29C 65/00
 B29K101:10
 B29K105:08
 B29L 9:00

(21)Application number : 06-035379

(71)Applicant : KANEBO LTD

(22)Date of filing : 07.02.1994

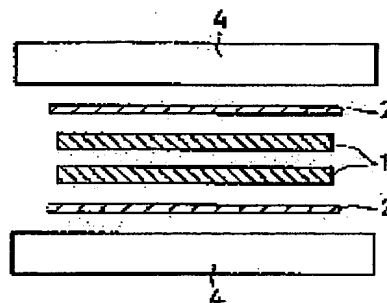
(72)Inventor : MACHIDA YOHEI
 INABA SHINICHI

(54) PRODUCTION OF FIBER REINFORCED RESIN COMPOSITE MATERIAL

(57)Abstract:

PURPOSE: To stably and efficiently obtain a composite material the surface of which is roughened by the exposure of a fiber base material by laminating a thermoplastic resin film to prepregs to heat the whole under pressure not only to soften the thermoplastic resin film but also to cure the resin of the prepregs and subsequently peeling the film to form a rough surface to the prepreg composite.

CONSTITUTION: For example, two prepregs each formed by impregnating a fiber base material composed of a glass fiber fabric with a 120° C curable epoxy resin and thermoplastic resin films 2 each composed of a polyethylene film with softening temp. of about 90° C and an m.p. of 110° C are laminated to the upper and rear surfaces of the obtained prepreg laminate and the whole is heated at 120° C while pressed by the molding plates 4 of a hot press to be subjected to laminate molding. After molding, the polyethylene films 2 are peeled. That is, when the prepreg laminate is heated along with the thermoplastic resin films, the fiber base material of the prepregs is held to a hard state but the resin thereof is fluidized and the transfer surface of the surface shape of the fiber base material is formed on the surfaces of the thermoplastic resin films.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-214680

(43) 公開日 平成7年(1995)8月15日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 2 9 C 70/06				
C 0 8 J 5/04		7310-4F		
// B 2 9 C 65/00		7639-4F		
B 2 9 K 101:10				
		7310-4F	B 2 9 C 67/ 14	G
審査請求 未請求 請求項の数1 F D (全 5 頁) 最終頁に続く				

(21) 出願番号 特願平6-35379

(22) 出願日 平成6年(1994)2月7日

(71) 出願人 000000952

鐘紡株式会社

東京都墨田区墨田五丁目17番4号

(72) 発明者 町田 陽平

群馬県邑楽郡大泉町富士3丁目19番1号

(72) 発明者 稲場 伸一

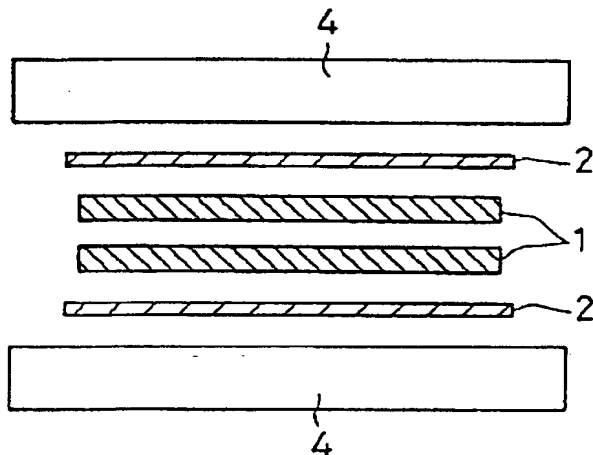
群馬県邑楽郡大泉町北小泉3丁目23番1-109号

(54) 【発明の名称】 繊維強化樹脂複合材料の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 表面にプリプレグの繊維基材が露出した均一な粗化面を有する繊維強化樹脂複合材料を製造する。

【構成】 プリプレグ1の表面に熱可塑性樹脂フィルム2を積層し、加圧下で加熱して熱可塑性樹脂フィルムを軟化させると共に、プリプレグ1の樹脂を硬化させた後、熱可塑性樹脂フィルムを剥離して、表面に均一な粗化面を形成する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 プリプレグに熱可塑性樹脂フィルムを積層し、加圧下で加熱して該熱可塑性樹脂フィルムを軟化させると共に、プリプレグの樹脂を硬化させた後、熱可塑性樹脂フィルムを剥離して、表面に粗化面を形成することを特徴とする繊維強化樹脂複合材料の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、繊維強化樹脂複合材料に係り、更に詳しくは表面に均一な粗化面を形成した繊維強化樹脂複合材料の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 繊維強化樹脂複合材料（以下、単に「複合材料」と略記することがある）は、一般に繊維基材に樹脂を含浸したプリプレグを加圧下に加熱成形して製造されている。一般に複合材料の表面に何かを接着をする場合には、表面が粗化面、例えば繊維基材が露出した面であった方が接着力が向上し好ましいことがある。しかし、プリプレグを加圧下で加熱成形した場合、プリプレグの樹脂がフローするため、得られる複合材料は通常平滑な樹脂表面が形成されることになる。そこで複合材料の表面に粗化面を形成する方法として、成形後の表面を物理的または化学的にエッチングを施す方法（工業材料、Vol. 39, No. 9, P7~13, 1991、「接着の界面化学」、中前勝彦著）、あるいは特開昭 5-24123号公報に開示された方法が知られている。

【0003】 上記公報の方法は、プリプレグと樹脂を含浸させない繊維からなるピールプライと、樹脂を含浸させて半硬化させた繊維からなるピールプライプリプレグとを積層し、加圧下で加熱して樹脂を硬化させた後、ピールプライおよびピールプライプリプレグの硬化物を剥離して、表面に粗化面を形成するものである。

【0004】 しかしながら、エッチングを施す方法では、工程が非常に長く且つ粗い凹凸を付け難いという欠点がある。また、上記公報の方法では、プリプレグに含浸された樹脂がピールプライに吸収されるほか、ピールプライプリプレグに含浸された樹脂もピールプライに吸収されて硬化するため、剥離する際に大きな力を必要とし、取扱いが不便であるという問題点がある。なお、いずれの方法によっても得られる複合材料の表面に繊維基材を露出させることは困難である。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 本発明者等は上述の事情に鑑み鋭意研究した結果、プリプレグに熱可塑性樹脂フィルムを積層し特定の条件で加熱成形することにより上述の問題点が解消されることを見出し、本発明を完成したものであって、本発明の目的は、表面に繊維基材が露出する均一な粗化面を形成した複合材料を安定且つ効率よく製造する方法を提供するにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】 上記目的は、プリプレグに熱可塑性樹脂フィルムを積層し、加圧下で加熱して該熱可塑性樹脂フィルムを軟化させると共に、プリプレグの樹脂を硬化させた後、熱可塑性樹脂フィルムを剥離して、表面に粗化面を形成することを特徴とする繊維強化樹脂複合材料の製造方法によって達成される。

【0007】 本発明に用いるプリプレグは、繊維基材に樹脂を含浸したものである。ここで使用される繊維基材は、強化繊維をシート状にしたものであり、強化繊維としては、後述の加熱成形において熱軟化しないものであれば特にその種類は限定されるものでなく、例えばガラス繊維、炭素繊維、アラミド繊維、セルロース繊維、ビニロン繊維、PEEK繊維、PPS繊維等を挙げることができる。繊維基材は、上記強化繊維を例えば織物、ペーパー、一方引き揃えシート等のシート状にしたものであるが、本発明の目的には織物が好ましく、特に表面に凹凸の多い形状のものが好適である。

【0008】 プリプレグに含浸する樹脂は、好ましくは熱硬化性樹脂であるが、本発明においては熱可塑性樹脂を用いることもできる。ここで用いる熱硬化性樹脂としては、加熱時に流動性を有する樹脂であれば特に限定されるものではなく、例えばエポキシ樹脂、フェノール樹脂、ビニルエステル樹脂、ポリエステル樹脂等を挙げることができる。加熱時の流動性は、Bステージ化の進みを弱くする、含有溶剤の割合を多くする、あるいは加熱温度を高くする等の方法である程度調節することが可能である。

【0009】 本発明に用いる熱可塑性樹脂フィルムは、プリプレグの樹脂が硬化する際にこれと接着しないものであり、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、フッ素樹脂、ポリスチレン等からなるフィルムを挙げることができる。また、加熱成形時に流動性のよい樹脂フィルムの表面をシリコンやフッ素等で表面離型処理を施したものでよい。

【0010】 上記熱可塑性樹脂フィルムは、プリプレグの樹脂に対する表面不滑性のもの、即ち加熱によりプリプレグの樹脂が流動状態となったときに熱可塑性樹脂フィルムの表面をあまり扱がらないものが好ましく、具体的には臨界面張力が50 dyne/cm以下程度のものが好ましい。表面不滑性でない場合には、硬化したプリプレグとの剥離が難しくなる傾向にある。

【0011】 本発明の方法で複合材料を製造するには、上記プリプレグの粗化したい表面に上記熱可塑性樹脂フィルムを重ね合わせ、加圧下で加熱成形を施し、プリプレグの樹脂を一旦流動化したのち十分硬化せしめ、加熱成形後に熱可塑性樹脂フィルムを冷却し剥離に十分耐えられる強度としたのち、熱可塑性樹脂フィルムを剥離すればよい。

【0012】 上述の方法において加熱成形温度は、プリプレグの樹脂を一旦流動化したのち硬化させる温度であ

ると共に、少なくとも熱可塑性樹脂フィルムの軟化温度よりは高く、熱可塑性樹脂フィルムにプリプレグの繊維基材の表面形状が十分転写しうる程度軟化する温度が好ましい。このような軟化温度は、例えば熱機械的分析装置（TMA）のペネトレーション法によって求めることができる。また、上記加熱成形温度は、好ましくは使用する熱可塑性樹脂フィルムの融点よりも15℃低い温度よりは高い温度、更に好ましくは該融点よりも10℃低い温度よりは高い温度である。また、成形時の加圧圧力は、上記熱可塑性樹脂フィルムが十分軟化していればさほど重要ではなく、例えば5 kgf/cm²程度以上であれば十分である。

【0013】通常、プリプレグは複数枚を重ね合わせて積層成形されるが、本発明の方法においてはプリプレグは1枚であってもよい。また、積層したプリプレグの内層部分に他の素材、例えば金属箔、金属板、積層板、セラミック板、木材等のプリプレグと複合可能なものを積層することもできる。

【0014】また、本発明の方法で得られる複合材料の形態は、一般的には積層板等の平板な構造のものであるが、本発明の方法では、曲面状、バルク状のものであっても何ら支障はない。したがって、成形方法も熱プレス法のみならず、オートクレーブによる方法も可能である。

【0015】

【作用】本発明の複合材料の製造方法においては、プリプレグと熱可塑性樹脂フィルムとを積層して加圧下に加熱すると、プリプレグの繊維基材は硬いままであるが、プリプレグの樹脂は十分流動化され、且つ熱可塑性樹脂フィルムも軟化される。このため、軟化した熱可塑性樹脂フィルムの表面には繊維基材の表面形状が転写された転写面が形成される。流動化しているプリプレグの樹脂は一部繊維基材と上記転写面との間に流延するが、プリプレグの表層部分に残存する樹脂は少なく、樹脂の多くは繊維基材の内部に吸収される。したがって、プリプレグの表面に繊維基材が露出した状態で樹脂が硬化することになる。この状態で熱可塑性樹脂フィルムを冷却硬化して剥離すれば、複合材料の表面は繊維基材が露出した均一な粗化面が形成されることになる。

【0016】

【実施例】以下、本発明の実施例を図面に基づいて説明する。なお、その前に本明細書における「表面粗化度」の評価方法について説明する。

【0017】〈表面粗化度〉得られた複合材料の表面形状を走査型電子顕微鏡写真に撮り、次の基準で判定評価した。

◎：表面に繊維基材が露出し、極めて粗い表面であった。

○：表面に繊維基材の一部が露出し、粗い表面であった。

×：平滑な表面であった。

【0018】実施例1

図1は実施例1～4及び比較例2の繊維強化樹脂複合材料の製造方法を示す分解説明図である。ガラス繊維織物からなる繊維基材（商品名：ガラスクロスG7633、鐘紡（株）製）に120℃硬化型のエポキシ樹脂を含浸したプリプレグ（樹脂付着量40重量%）1を2枚積層し、その上面と下面とに厚さ0.2mm、軟化温度約90℃、融点110℃のポリエチレンフィルムからなる熱可塑性樹脂フィルム2を積層し、7 kg/cm²の圧力で加圧すると共に、温度120℃で加熱し1時間積層成形した。成形後、ポリエチレンフィルム2を剥離し、繊維強化樹脂複合材料を得た。ポリエチレンフィルム2は、硬化したプリプレグのエポキシ樹脂と強く固着することなく、熱可塑性樹脂フィルムは容易に剥離された。得られた繊維強化樹脂複合材料の結果は表1の通りであった。

【0019】実施例2

実施例1において120℃で行った積層成形の温度を110℃に代えた以外は、実施例1と同様にして繊維強化樹脂複合材料を得た。得られた繊維強化樹脂複合材料の結果は表1の通りであった。

【0020】実施例3

実施例1において使用したポリエチレンフィルムからなる熱可塑性樹脂フィルム2を厚さ0.1mm、軟化温度140～150℃、融点164℃のポリプロピレンフィルムに代え、且つ積層成形の温度を160℃に代えた以外は、実施例1と同様にして繊維強化樹脂複合材料を得た。ポリプロピレンフィルムからなる熱可塑性樹脂フィルム2は、硬化したプリプレグのエポキシ樹脂と強く固着することなく、ポリプロピレンフィルムは容易に剥離された。得られた繊維強化樹脂複合材料の結果は表1の通りであった。

【0021】実施例4

実施例1において使用した繊維基材にエポキシ樹脂を含浸したプリプレグ1を繊維基材にレゾール型フェノール樹脂を含浸したプリプレグに代えた以外は、実施例1と同様にして繊維強化樹脂複合材料を得た。ポリエチレンフィルムからなる熱可塑性樹脂フィルム2は、硬化したプリプレグのフェノール樹脂と強く固着することなく、熱可塑性樹脂フィルムは容易に剥離された。得られた繊維強化樹脂複合材料の結果は表1の通りであった。

【0022】実施例5

図2は実施例5の繊維強化樹脂複合材料の製造方法を示す分解説明図である。厚さ70μmのアルミ箔3の上面及び下面に実施例1で用いたのと同様のプリプレグ1を積層し、更にその上面と下面とに実施例3で用いたのと同様のポリプロピレンフィルムからなる熱可塑性樹脂フィルム2を積層し、7 kg/cm²で加圧すると共に温度170℃で1時間積層成形した。成形後、ポリエチレンフィルムを剥離し、繊維強化樹脂複合材料を得た。得られ

た繊維強化樹脂複合材料の結果は表 1 の通りであった。

【0023】比較例 1

図 3 は比較例 1 の繊維強化樹脂複合材料の製造方法を示す分解説明図である。実施例 1 で積層した熱可塑性樹脂フィルム 2 を積層しない以外は、実施例 1 と同様にして繊維強化樹脂複合材料を得た。得られた繊維強化樹脂複合材料の結果は表 1 の通りであった。

*

* 【0024】比較例 2

実施例 3 において 160℃で行った積層成形の温度を 140℃に代えた以外は、実施例 3 と同様にして繊維強化樹脂複合材料を得た。得られた繊維強化樹脂複合材料の結果は表 1 の通りであった。

【0025】

【表 1】

	表 面 粗化度	熱可塑性樹脂フィルム			成形温度 (℃)	プリプレグ に含浸した 樹脂の種類
		素材	融 点 (℃)	軟化温度 (℃)		
実施例 1	◎	PE	110	約 90	120	エポキシ
実施例 2	○	PE	110	約 90	110	エポキシ
実施例 3	○	PP	164	140~150	160	エポキシ
実施例 4	◎	PE	110	約 90	120	フェノール
実施例 5	◎	PP	164	140~150	170	エポキシ
比較例 1	×	なし	——	——	120	エポキシ
比較例 2	×	PP	164	140~150	140	エポキシ

注 1) PE : ポリエチレン

注 2) PP : ポリプロピレン

【0026】

【発明の効果】本発明の製造方法によれば、プリプレグに熱可塑性樹脂フィルムを積層して、加圧下で加熱してプリプレグを硬化せしめた後、熱可塑性樹脂フィルムを剥離するようにしたので、硬化したプリプレグの表面に繊維基材が露出した均一な粗化面を形成することができると共に、熱可塑性樹脂フィルムは容易に剥離することができる。したがって、繊維基材を露出した粗化面を有する繊維強化複合材料を安定且つ効率よく製造すること※

※が可能となる。

【図面の簡単な説明】

30 【図 1】実施例 1 ~ 4 及び比較例 2 の製造方法を示す分解説明図。

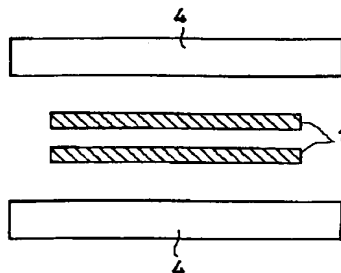
【図 2】実施例 5 の製造方法を示す分解説明図。

【図 3】比較例 1 の製造方法を示す分解説明図。

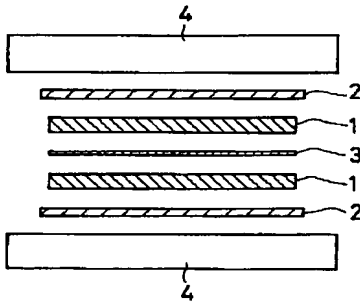
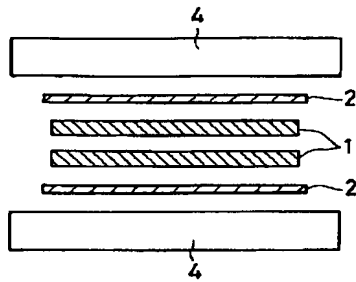
【符号の説明】

- 1 プリプレグ
- 2 熱可塑性樹脂フィルム
- 3 アルミ箔
- 4 熱プレス用成形板

【図 3】



【図 1】



【手続補正書】

【提出日】平成 6 年 6 月 29 日

【手続補正 2】

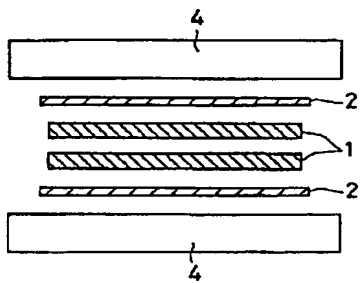
【補正対象書類名】図面

* 【補正対象項目名】全図

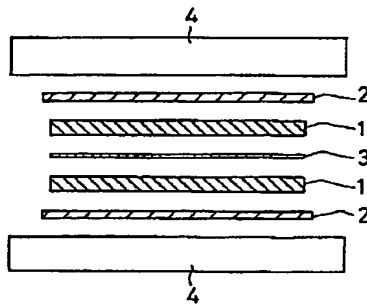
【補正方法】変更

* 【補正内容】

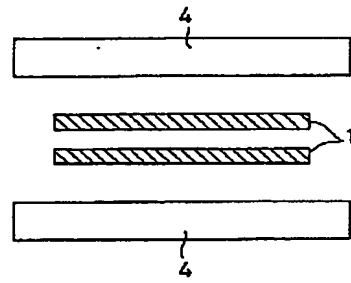
【図 1】



【図 2】



【図 3】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁶

B 2 9 K 105:08

B 2 9 L 9:00

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所